





FLUORINE-CONTAINING COPOLYMER

Patent number: JP58069213
Publication date: 1983-04-25
Inventor: NAKAGAWA TSUNEO; YAMAGUCHI SADAMITSU;
AMANO TOSHIHIKO; ASANO KOUZOU
Applicant: DAIKIN IND LTD
Classification:
- **international:** C08F214/26
- **european:**
Application number: JP19810150418 19810921
Priority number(s): JP19810150418 19810921

Also published as:

 EP0075312 (A2)
 US4546157 (A1)
 EP0075312 (A3)
 EP0075312 (B1)

Abstract not available for JP58069213

Abstract of corresponding document: **US4546157**

A fluorine-containing copolymer comprising monomeric units of (a) from 95.8 to 80% by weight of tetrafluoroethylene, (b) from 4 to 14% by weight of hexafluoropropene, and (c) from 0.2 to 6% by weight of perfluorovinyl ether of the formula: (I) wherein n is an integer of 1 to 4, and m is an integer of 0 to 3, and having excellent stress crack resistance when formed into a molded article.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

BEST AVAILABLE COPY

JP58069213

Publication Title:

Fluorine-containing copolymer

Abstract:

A fluorine-containing copolymer comprising monomeric units of (a) from 95.8 to 80% by weight of tetrafluoroethylene, (b) from 4 to 14% by weight of hexafluoropropene, and (c) from 0.2 to 6% by weight of perfluorovinyl ether of the formula: (I) wherein n is an integer of 1 to 4, and m is an integer of 0 to 3, and having excellent stress crack resistance when formed into a molded article.

Data supplied from the esp@cenet database - <http://ep.espacenet.com>

This Patent PDF Generated by Patent Fetcher(TM), a service of Patent Logistics, LLC

Patent provided by Sughrue Mion, PLLC - <http://www.sughrue.com>

⑫ 公開特許公報 (A)

昭58—69213

⑤ Int. Cl.³

C 08 F 214/26

// (C 08 F 214/26

214/28

216/14)

識別記号

庁内整理番号

7342—4 J

⑬ 公開 昭和58年(1983) 4 月25日

発明の数 1

審査請求 未請求

(全 7 頁)

⑭ 含フッ素共重合体

① 特 願 昭56—150418

② 出 願 昭56(1981) 9 月21日

⑦ 発 明 者 中川恒夫
茨木市山手台 5—10—11⑧ 発 明 者 山口貞充
吹田市山田南29—2—617

⑦ 発 明 者 天野俊彦

摂津市一津屋 2—21—21

⑧ 発 明 者 浅野興三

茨木市北春日丘4丁目 5 番13号

⑨ 出 願 人 ダイキン工業株式会社

大阪市北区梅田 1 丁目12番39号
新阪急ビル

⑩ 代 理 人 弁理士 青山葆 外 2 名

明 細 書

1. 発明の名称

含フッ素共重合体

2. 特許請求の範囲

1.(a) テトラフルオロエチレン 95.8～80 重量
%、(b) ヘキサフルオロプロペン 4～14 重量%、
および(c) 一般式：
$$\text{CF}_2 = \text{CF} \left(\text{O} - \text{CF}_2 - \overset{\text{CF}_3}{\underset{|}{\text{CF}}} \right)_n \text{O} - \text{CF}_2 \text{CF}_2 \text{CF}_3$$

〔式中、n は 1～4 の数を表わす。〕

で示されるパーフルオロビニルエーテル 0.2～6
重量%の各共重合体単位から成ることを特徴とす
る含フッ素共重合体。2. テトラフルオロエチレン 94.5～88 重量%、
ヘキサフルオロプロペン 5～13 重量%およびパ
ーフルオロビニルエーテル 0.5～4 重量%である
特許請求の範囲第 1 項記載の含フッ素共重合体。3. 一般式中の n が 1～2 の数である特許請求の
範囲第 1 項記載の含フッ素共重合体。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、含フッ素共重合体に関し、更に詳しくはテトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロペンおよび特定のパーフルオロビニルエーテルの共重合単位から成る新規含フッ素共重合体に関する。

従来、テトラフルオロエチレン（以下、TFE という。）とヘキサフルオロプロペン（以下、HFP という。）の共重合体（以下、FEP 共重合体という。）は、溶融押出し可能なフッ素樹脂として知られている（米国特許第 2,549,935 号および第 2,598,288 号参照）。しかし、FEP 共重合体は、耐熱性、耐候性、耐化学薬品性については優れているが、耐ストレスクラック性が劣る。これを補うためには溶融粘度を大きくする必要があるが、溶融粘度を大きくすると溶融成形性が劣るので著しく不利である。

この様な FEP 共重合体の欠点を改良するため、TFE および HFP に第 3 の単量体としてパーフルオロアルキルビニルエーテル〔 $\text{CF}_2 = \text{CF} -$

$O \leftarrow CF_2 \rightarrow_n CF_3$ (ここで $n = 1$ または 2 である。
)] を加えて共重合させた含フッ素共重合体が提案されている (特公昭 55-45084 号公報参照)。しかし、FEP 共重合体の前記欠点を改良するには該第 3 単量体を多量に必要とし、しかも該第 3 単量体は高価なものであるため、経済的な不利益を免れ難く、満足すべきものではなかつた。

一方、上記パーフルオロアルキルビニルエーテルを含めて種々のパーフルオロビニルエーテルと TFE および HFP との共重合体が開示されている (特開昭 53-29389 号公報参照)。しかし、この共重合体も前記と同様の不利益を免れ難い。

本発明者らは、FEP 共重合体の有する前記欠点を経済的に有利に改善するために鋭意研究を重ねた結果、第 3 単量体として、側鎖がある程度長く、耐熱性がよく、かつ共重合性の優れた特定のパーフルオロビニルエーテルを用いることにより耐ストレスクラック性がよく、成形性が優れ、かつ経済的に有利な含フッ素共重合体を得られるこ

とも優れた耐ストレスクラック性を示す。

本発明の含フッ素共重合体の一成分であるパーフルオロビニルエーテル [1] は、たとえば特公昭 39-21228 号公報に開示されており、また該単量体と他のフルオロオレフィンとの共重合については特公昭 42-18340 号公報に開示されているが、本発明に係る特定の含フッ素共重合体およびその特徴については全く知られていない。

パーフルオロビニルエーテル [1] は、たとえば前記特公昭 39-21228 号公報に記載の方法により容易に製造することができる。

本発明の含フッ素共重合体は、塊状、溶液、懸濁および乳化重合のいずれの方法によつても調製することができる。重合反応は、一般に重合開始剤によつて開始する。重合開始剤としては、生成した共重合体の熱的性質を損なわないものであれば、いずれも使用可能であり、たとえば高度にフッ素化されたパーオキサイド類で $RfCOO_2$ (ここで Rf はパーフルオロアルキル基、 ω -ヒドロパーフルオロアルキル基またはパークロロフル

トを見出し本発明を完成するに至つた。

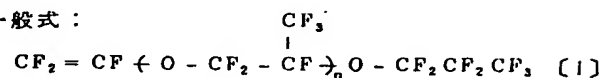
すなわち、本発明の要旨は、

(a) テトラフルオロエチレン 95.8 ~ 80 重量%、

(b) ヘキサフルオロプロペン 4 ~ 14 重量%、

および

(c) 一般式：



[式中、 n は 1 ~ 4 の数を表わす。]

で示されるパーフルオロビニルエーテル 0.2 ~ 6 重量%の各共重合体単位から成ることを特徴とする含フッ素共重合体に存する。

しかして、本発明の含フッ素共重合体によれば、これから得られる成形品の耐ストレスクラック性が著しく良好となる。たとえば、前記 FEP 共重合体の場合には分子量 (または熔融粘度) を低下させると耐ストレスクラック性が低下し、特に熔融粘度が 4×10^4 ポイズ以下ではその傾向が著しいのに対し、本発明の含フッ素共重合体ではこのような耐ストレスクラック性の低下はほとんど見られず、熔融粘度が 1×10^4 ポイズ程度であつ

オロアルキル基を表わす) で示されるジアルキルパーオキサイドが好ましく使用される。

反応単量体間の接触をよくするために反応溶媒を用いることができ、好適なものとして 1,1,2-トリクロロ-1,2,2-トリフルオロエタン、1,2-ジクロロ-1,1,2,2-テトラフルオロエタン、トリクロロフルオロメタン、ジクロロジフルオロメタン、パーフルオロシクロブタン、HFP ダイマーなどのハロゲン化炭化水素、ベンゼン、ジフェニル、シクロヘキサン、水、酢酸、アセトニトリルなどが例示される。

共重合反応は、通常ラジカル重合反応において用いられる連鎖移動剤 (たとえばイソパラフィン、四塩化炭素、マロン酸ジエチル、メルカプタン、ジエチルエーテル、アルコールなど) を添加することにより好ましく実施することができる。さらに、必要に応じて安定剤 (たとえばメチルセルロース、ポリビニルアルコールなど)、pH 調整剤 (たとえばリン酸-リン酸塩、ホウ酸-ホウ酸塩などの緩衝剤) を用いることもできる。

その他の重合条件、たとえば反応温度、反応圧力は、特に制限されることなく、TFEとHFPの共重合に際して従来採用されてきた条件をそのまま適用することができる。通常、反応温度としては10～50℃、好ましくは20～40℃、より好ましくは室温付近の温度が採用され、反応圧力としては5～25 kg/cm²G、通常単量体の自生圧力が採用される。

各単量体の割合は、上記の通り、TFE 95.8～80重量%、HFP 4～14重量%およびパーフルオロビニルエーテル〔I〕0.2～6重量%であり、好ましくはTFE 94.5～88重量%、HFP 5～18重量%およびパーフルオロビニルエーテル〔I〕0.5～4重量%である。パーフルオロビニルエーテルの割合が0.2重量%以下では目的とする耐ストレスクラック性が改良されず、FEP共重合体の前記問題点を解決することができず、また6重量%以上になると共重合体の融点が著しく低下して好ましくない。

次に実施例、比較例および応用例を示し、本発

$$n-1 \text{ VE (重量\%)} = 2.4 \times \frac{D_{1340 \text{ cm}^{-1}}}{D_{2350 \text{ cm}^{-1}}}$$

(ここで $D_{1340 \text{ cm}^{-1}}$ は 1340 cm^{-1} の波数の吸光度、 $D_{2350 \text{ cm}^{-1}}$ は 2350 cm^{-1} の波数の吸光度である。)

HFPの含有量は、厚さ0.05 mmのフィルムを測定し、 980 cm^{-1} の波数の吸光度から $n-1 \text{ VE}$ 含量を補正した次式に基づいて算出した。

$$\text{HFP (重量\%)} = 3.2 \left(\frac{D_{982 \text{ cm}^{-1}}}{D_{2350 \text{ cm}^{-1}}} - 0.25 \times n-1 \text{ VE (重量\%)} \right)$$

TFE/HFP/CF₂=CF-O-CF₂CF₂CF₃ (以下、 $n-0 \text{ VE}$ という。)共重合体については、 $n-1 \text{ VE}$ の場合と同様に赤外線吸収スペクトルから次式により算出した。

$$n-0 \text{ VE (重量\%)} = 3.75 \times \frac{D_{1340 \text{ cm}^{-1}}}{D_{2350 \text{ cm}^{-1}}}$$

(フィルムの厚さ0.10 mm)

$$\text{HFP (重量\%)} = 3.2 \left(\frac{D_{982 \text{ cm}^{-1}}}{D_{2350 \text{ cm}^{-1}}} - 0.13 \times n-0 \text{ VE (重量\%)} \right)$$

(フィルムの厚さ0.05 mm)

明をさらに具体的に説明する。

なお、実施例および比較例に示す共重合体の物性値は、以下の測定方法により測定した。

共重合体組成

共重合体中のパーフルオロビニルエーテルおよびHFPの含有量は、350℃で加熱成形した厚さ0.05±0.01 mmおよび0.10±0.01 mmのフィルムを用いて赤外線吸収スペクトルを測定し、算出した(赤外線吸収スペクトル測定機として島津製作所製IR-440使用)。

共重合体中のパーフルオロビニルエーテルに基づく特性吸収は 998 cm^{-1} および 1340 cm^{-1} であるが、 998 cm^{-1} の吸収はHFPに基づく特性吸収である 980 cm^{-1} に近接するため重なる。そこで共重合体中の $n-1$ であるパーフルオロビニルエーテル(以下、 $n-1 \text{ VE}$ という。)の含有量は、厚さ0.10 mmのフィルムの測定から 1340 cm^{-1} の波数における吸光度と 2350 cm^{-1} の波数における吸光度より下式に基づいて算出した。

(b)非溶解粘度

島津製作所製高化式フローテスターを用い、共重合体を内径9.5 mmのシリンダーに装填し、温度380℃で5分間保つた後、7 kgのピストン荷重下に内径2.1 mm、長さ8 mmのオリフィスを通して押し出し、このときの押出速度(g/分)で53150を割つた値を比溶解粘度として求めた。

(c)融点

パーキンエルマー製DSC II型を用い、昇温速度10℃/分で室温から昇温し、融解曲線の最大値を融点とした。

実施例1

水1000部(重量部、以下同様)を収容できる攪拌機付ガラス製オートクレーブに、脱ミネラル、脱空気した純水260部を仕込み、内部空間を純窒素ガスで充分置換した後、これを排除し、ここにまず $n-1 \text{ VE}$ ($n=1$ のパーフルオロビニルエーテル〔I〕)10部、次いでHFP 260部を圧入した。オートクレーブ内容物の攪拌を開始し、温度を25℃に調節した。次いでTFE

を圧入して圧力を $8.5 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ にした。ここへ重合開始剤としてジ(ω-ヒドロデカフルオロヘプタノイル)パーオキサイド(以下、DHPという。)0.57部を加えると、反応は直ちに始まった。反応中、圧力の低下に応じてTFEを追加圧入し、オートクレーブ内の圧力を $8.0 \sim 8.5 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ に保った。開始剤を添加してから50分後に分子量調節を行うために連鎖移動剤としてメタノール8.5部を添加した。反応開始5時間後にDHP0.29部を追加して、反応を10.8時間行つた後、未反応単量体と粒状粉末を回収した。この粉末に純水を加え、ミキサーにより洗浄し、120℃で24時間乾燥して共重合体88部を得た。得られた共重合体の組成：HFP12.6重量%、n-1VE1.5重量%。融点265℃。比溶融粘度 2.1×10^{-4} ポイズ。

実施例2

n-1VE4部およびメタノール17部を用い、反応時間を8.5時間とする以外は実施例1と同様の手段を繰り返して共重合体62部を得た。組成

び粒状粉末を回収した。この粉末に純水を加え、ミキサーにより洗浄し、120℃で24時間乾燥して共重合体8.5部を得た。組成：HFP11.3重量%、n-1VE2.0重量%。融点265℃。比溶融粘度 1.6×10^{-4} ポイズ。

実施例4

開始剤としてDHPを反応開始時に0.03部および反応開始から6、11ならびに16時間後に0.003部添加し、反応開始から2、11および15時間後にメタノール0.1部を添加し、反応時間を28時間とする以外は実施例3と同様の手順を繰り返して共重合体4.3部を得た。組成：HFP11.2重量%、n-1VE2.2重量%。融点269℃。比溶融粘度 4.4×10^{-4} ポイズ。

実施例5

n-1VEを0.12部用い、開始剤としてDHPを反応開始時に0.03部および反応開始から6、11、16ならびに21時間後に0.003部添加し、メタノールを反応開始から3、14および22時間後に0.11部添加し、反応時間を24時間とす

：HFP10.3重量%、n-1VE0.7重量%。融点274℃。比溶融粘度 2.4×10^{-4} ポイズ。

実施例3

水30部を収容できる攪拌機付ガラスライニングオートクレーブに脱ミネラル、脱空気にした純水10部および炭酸水素ナトリウム0.01部を仕込み、内部空間を純窒素ガスで充分置換した後、これを排除し、ここにまずn-1VE0.36部、次いでHFP10部を圧入した。オートクレーブ内容物の攪拌を開始し、温度を24℃に調節した。次いでTFEを圧入して圧力を $8.4 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ にした。ここへ開始剤としてDHP0.05部を加えると、反応は直ちに始まった。反応中、TFEを追加圧入してオートクレーブ内の圧力を $8.4 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ に保った。反応開始から6、11、16、21および21時間後に、DHP0.005部をそれぞれ追加した。また、分子量調節を行うため、反応開始から3、8、15および26時間後に連鎖移動剤としてメタノール0.11部をそれぞれ添加した。反応を33時間行つた後、未反応単量体およ

る以外は実施例3と同様の手順を繰り返して共重合体4.4部を得た。組成HFP10.7重量%、n-1VE0.9重量%。融点265℃。比溶融粘度 5.5×10^{-4} ポイズ。

実施例6

n-1VEの代りに $\text{CF}_2=\text{CF}(\text{O}-\text{CF}_2-\overset{\text{CF}_3}{\underset{|}{\text{CF}}}-\text{O}-\text{CF}_2-\text{CF}_3)$ (以下、n-2VEという。)10部を用い、メタノール5.3部を添加し、反応時間を7.8時間とする以外は実施例1と同様の手順を繰り返して共重合体64.5部を得た。融点266℃。比溶融粘度 2.4×10^{-4} ポイズ。

実施例7

n-2VE4部およびメタノール5.3部を用い、反応時間を8.5時間とする以外は実施例1と同様の手順を繰り返して共重合体71.3部を得た。融点268℃。比溶融粘度 2.1×10^{-4} ポイズ。

比較例1～3

第1表に示すパーフルオロビニルエーテル(比較例1では用いず)を用い、同表に示す量でアルコールを添加し、反応時間を同表に示す時間とす

る以外は実施例1と同様の手順を繰り返して同表に示す量の共重合体を得た。得られた共重合体の組成、融点および比溶融粘度を同じく第1表に示す。

(以下余白)

第1表

| 比較例 | パーフルオロ ビニルエーテル 化合物 仕込量(部) | メタノール (部) | 重合時間 (hr) | 共重合体 | | |
|-----|------------------------------------|--------------|--------------|-----------|-------------------|-----------------------|
| | | | | 特種 HFP | パーフルオロ ビニルエーテル | 融点 ($^{\circ}$ C) |
| | | | | | | |
| 1 | — | 3.5 | 6.3 | 64 | 13.1 | 264 |
| 2 | n-0 VE ¹⁾ | 10.5 | 8.5 | 98 | 9.8 | 267 |
| 3 | n-0 VE ¹⁾ | 4.0 | 10.8 | 74 | 9.8 | 276 |
| | | | | | | 比溶融粘度 (ポイズ) |
| | | | | | | 5.4×10^4 |
| | | | | | | 2.6×10^4 |
| | | | | | | 1.8×10^4 |

注：1) $CF_2 = CF - O - CF_2CF_2CF_3$

この様にして得られた共重合体の耐ストレスクラック性能を次の様な苛酷な測定法により評価した。

テストピースの作成

80φの金型にアルミニウム箔をひき、共重合体35gを入れ、上からアルミニウム箔で覆って共重合体をサンドイッチ状にする。この様にして共重合体を入れた金型を880 $^{\circ}$ Cに加熱したヒートプレスに25分間保持した後、45kg/cm²の圧で2分間加圧する。その後直ちに50kg/cm²の圧で加圧しながら水冷して厚さ2mmのシートを得る。得られたシートをJIS K 6301の1号ダンベル型で打ち抜き、テストピースの中心に長軸に対して垂直に幅5mm、深さ0.4mmのノッチをつけて耐ストレスクラック測定用テストピースとする。

耐ストレスクラック測定

引張り試験機(新興通信株式会社製TOM-500)を用い、これに付属した恒温槽を200 $^{\circ}$ Cに保持し、テストピースを該試験機のチャックに

装着する。10分後、クロスヘッド速度5mm/分で8.9kg/cm²の応力まで到達させる。この状態で保持し、応力緩和により低下した応力を8分ごとに8.9kg/cm²に戻す。この様にしてテストピースが破断するまでに要する時間を測定する。

実施例2、比較例1および比較例3で得た共重合体を用いて上述の手順に従い耐ストレスクラック性を測定した。

比較例1の共重合体は比溶融粘度が高いにもかかわらず、わずかクロスヘッド始動時から4分で破断し、比較例3の共重合体は10分で破断した。一方実施例2の共重合体では60分以上破断しなかつた。

第2表

| 重合体 | 破断時間(分) |
|------|---------|
| 実施例2 | > 60 |
| 比較例1 | 4 |
| 比較例3 | 10 |

実施例1および比較例2の共重合体から作成したテストピースを上記と同様にチャックに装着し、

10分後、クロスヘッド速度5mm/分で29.4kg/cmの応力まで到達させた。この状態で保持し、応力緩和により低下した応力を8分ごとに29.4kg/cmに戻した。

破断時間は、比較例2の共重合体では34分であり、実施例1の共重合体では比熔融粘度が比較例2のものより低いにもかかわらず、47分と長かつた。

第3表

| 重合体 | 破断時間(分) |
|------|---------|
| 実施例1 | 47 |
| 比較例2 | 34 |

応用例

各実施例および比較例で得た共重合体を直径約3.0mm×長さ約8.0mmのペレットにし、下記の条件で電線被覆押出機により電線(径0.40mm)を被覆し、最高被覆速度および被覆電線の物性を測定した。

電線被覆押出機

シリンダー径 30mm

スクリーン/D 22

圧縮比 2.74

ダイチップの径 4mm×7mm

シリンダーの温度

後部 360℃

中部 390℃

前部 400℃

アダプター温度 400℃

ダイヘッド温度 410℃

ダイチップ温度 410℃

引落し率は約100として被覆電線を得た。結果を第2表に示す。

第2表

| | 共重合体 | 最高被覆速度(m/分) | 被覆厚み(mm) | 引張強さ | |
|------------|------|-------------|----------|---------------------------|-------|
| | | | | T.S.(kg/mm ²) | εL(%) |
| 応用例1 | 実施例5 | 55 | 0.15 | 2.99 | 428 |
| " 2 | " 4 | 75 | 0.18 | 3.66 | 501 |
| " 8 | " 8 | 200 | 0.16 | 3.68 | 556 |
| 比較 応用例1 | 比較例2 | 45 | 0.15 | 2.85 | 454 |

手続補正書(自発)

昭和57年 3月 8日

特許庁長官 殿

1. 事件の表示

昭和56年特許願第 150418 号

2. 発明の名称

含フッ素共重合体

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 大阪府大阪市北区御田1丁目12番39号 新阪急ビル

名称 (285) ダイキン工業株式会社

代表者 山 田 稔

4. 代理人

住所 大阪府大阪市東区本町2-10 本町ビル内

氏名 弁理士(6214) 青 山 篠 ほか 2名

5. 補正命令の日付 (自発)

6. 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明の欄



7. 補正の内容

明細書の発明の詳細な説明の欄中、次の個所を補正します。

(1) 10頁1行、「非熔融」とあるを「比熔融」と訂正。

(2) 18頁5行、「測定する」とあるを「測定し、3回測定した平均値を測定値とする(以下同様)」と訂正。

以 上

手 続 補 正 書 (自 発)

昭和57年12月

適日

特許庁長官殿

1. 事件の表示

昭和56年特許願第150418号

2. 発明の名称

含フッ素共重合体

以 上

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 大阪府大阪市北区梅田1丁目12番39号

新阪急ビル

名称 (285) ダイキン工業株式会社

代表者 山 田 稔

4. 代 理 人 〒541

住所 大阪府大阪市東区本町2-10 本町ビル内

氏名 弁理士 (6214) 青 山 稔 (ほか2名)

5. 補正命令の日付: (自 発)

6. 補正の対象

明細書の「発明の詳細な説明」の欄

7. 補正の内容

明細書の発明の詳細な説明の欄中、次の箇所を
補正します。

(1) 10頁3行、「9.5」を「11.3」と訂正。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.